

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-020572

(43)Date of publication of application : 21.01.1997

(51)Int.Cl.

C04B 37/00

C04B 35/573

C04B 35/565

C04B 35/80

C04B 41/87

(21)Application number : 07-169045

(71)Applicant : TOSHIBA CORP  
TOSHIBA ELECTRON ENG CORP

(22)Date of filing : 04.07.1995

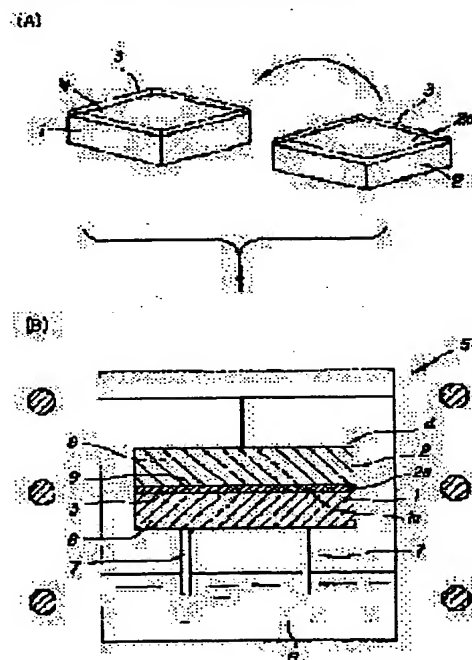
(72)Inventor : ASAYAMA MASAHIRO  
IKEDA MAKOTO

## (54) COMPOSITE MATERIAL OF CERAMIC-BASED FIBER AND ITS PRODUCTION

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To produce a ceramic-based fiber composite material having improved mechanical strength at the joint between individual preformed parts in the case of assembling plural preformed parts made of ceramic fibers for producing a ceramic-based fiber composite material having a complicate shape.

**SOLUTION:** A material for reaction sintering is included in plural preformed parts 1, 2 made of ceramic fiber and the obtained formed parts 1, 2 are assembled by applying a reaction sintering material 3 to the bonding faces 1a, 1b of the parts 1, 2. The assembly is subjected to reaction sintering under impregnation of a molten material 6 for forming a ceramic matrix. The reaction sintering material 3 applied to the bonding faces 1a, 1b of the parts 1, 2 is subjected to reaction sintering to bond the parts.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

27.02.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3510710

[Date of registration]

09.01.2004

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

BEST AVAILABLE COPY

Searching PAJ

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-20572

(43) 公開日 平成9年(1997) 1月21日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 4 B	37/00		C 0 4 B 37/00	Z
	35/573		41/87	S
	35/565		35/56	1 0 1 V
	35/80			1 0 1 L
	41/87		35/80	K
審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 6 頁) 最終頁に続く				

(21) 出願番号 特願平7-169045

(22) 出願日 平成7年(1995) 7月4日

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

(71) 出願人 000221339

東芝電子エンジニアリング株式会社

神奈川県川崎市川崎区日進町7番地1

(72) 発明者 浅山 雅弘

神奈川県横浜市鶴見区末広町2の4 株式会社東芝京浜事業所内

(72) 発明者 池田 誠

神奈川県川崎市川崎区日進町7番地1 東芝電子エンジニアリング株式会社内

(74) 代理人 弁理士 波多野 久 (外1名)

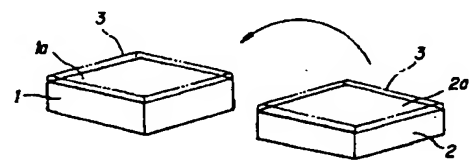
(54) 【発明の名称】 セラミックス基繊維複合部材およびその製造方法

(57) 【要約】

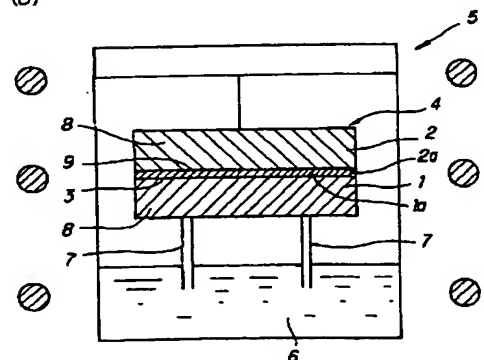
【課題】 複雑形状部材となるセラミックス基繊維複合部材を構成するためにセラミックス繊維からなる複数の予備成形体部材を組立てて製造されるものに対し、各予備成形体部材の接合部間の機械的強度特性の改善が図れるセラミックス基繊維複合部材およびその製造方法を提供する。

【解決手段】 セラミックス繊維からなる複数の予備成形体部材1、2に反応焼結用材料を含有させ、得られた成形体部材1、2の接合面1a、2aに反応焼結用材料3を塗布した状態で組立てた後、この組立てられた成形体にセラミックスマトリックスを構成するための溶融材料6を含浸させながら反応焼結させるとともに、成形体部材1、2の接合面1a、2aに塗布した反応焼結用材料3の反応焼結を行わせて接合する。

(A)



(B)



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 セラミックスマトリックス中にセラミックス繊維およびセラミックスウイスキーの少なくともいずれかを複合化したセラミックス基繊維複合部材であって、前記セラミックス基繊維複合部材が複数の部材を接合したものであり、各部材の接合部分を反応焼結で形成されるセラミックスからなる界面層で形成したことを特徴とするセラミックス基繊維複合部材。

【請求項2】 請求項1記載のセラミックス基繊維複合部材において、セラミックスマトリックスおよびセラミックス繊維およびセラミックスウイスキーは主としてSiCによって構成されており、界面層は主としてSiCまたはSiC+Siの組成で構成されていることを特徴とするセラミックス基繊維複合部材。

【請求項3】 セラミックス繊維およびセラミックスウイスキーの少なくともいずれかからなる複数の予備成形体パーツに反応焼結用材料を含有させ、得られた成形体パーツの接合面に反応焼結用材料を塗布した状態で組立てた後、この組立てられた成形体にセラミックスマトリックスを構成するための熔融材料を含浸させながら反応焼結させるとともに、前記成形体パーツの接合面に塗布した反応焼結用材料の反応焼結を行わせることにより接合を行うことを特徴とするセラミックス基繊維複合部材の製造方法。

【請求項4】 請求項3記載のセラミックス基繊維複合部材の製造方法において、セラミックス繊維およびセラミックスウイスキーとしてSiCを主成分とするものを適用するとともに、成形体パーツの接合面に塗布する反応焼結用材料として、Si粉末、SiC粉末、およびC粉末の少なくとも1種以上の組合せのスリップを適用し、組立てた成形体に熔融Siを含浸させることを特徴とするセラミックス基繊維複合部材の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明はセラミックス基繊維複合部材およびその製造方法に係り、特に複雑形状部品となるセラミックス基繊維複合部材を構成するためにセラミックス繊維からなる複数の予備成形体パーツを用いて製造されるものに対し、各予備成形体パーツの接合部の機械的強度特性の改善が図れるセラミックス基繊維複合部材およびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 セラミックス原料粉末を所定形状に成形してセラミックス成形体とした後に、得られたセラミックス成形体を焼結したセラミックス焼結体は、一般に高温まで強度低下が少なく、硬度、電気絶縁性、耐磨耗性、耐腐食性軽量性等の諸特性が従来の金属材料と比較して優れているため、重電設備部品、航空機部品、自動車部品、電子機器、精密機械部品、半導体装置材料などの電子用材料や構造用材料として広い分野において使用

されている。

【0003】 但し、セラミックス焼結体は、本質的に引張応力に弱く、破壊が一気に進行する、いわゆる脆性が高いという欠点を有している。

【0004】 このようなことから、高信頼性が要求される部位へのセラミックス部品の適用を可能にするためにセラミックス焼結体の高靱性化や破壊エネルギーの増大を図ることが強く求められている。

【0005】 即ち、ガスタービン部品、航空機部品、自動車部品等に使用されるセラミックス構成部品などのように耐熱性、および高温強度に加えて高い信頼性を要求されるセラミックス構造部品としては、無機物質や金属から成る補強繊維、ウイスキー、プレート、粒子等の強化素材をマトリックス焼結体に分散複合化させて靱性値や破壊エネルギー値等を高めたセラミックス複合材料部品の実用化研究が内外の研究機関等において進められている。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】 通常、このような場合、補強繊維を配置するには、1次元的に配向した繊維や、2次元的に形成されたクロスを積層して初期形状とし、これを加工によって最終部品形状に仕上げていた。しかしながら複雑形状物の場合、部品にかかる応力が複雑で、積層層間剥離方向にも作用すると、一般に剥離強度は繊維平行方向の強度に比べ極めて劣るため、本来期待される特性を発揮できない。

【0007】 そこで、部品への応力状態に応じた繊維配向方向にすべく設計を行い、各パーツ毎にセラミックス基繊維複合部材を製造し、これを組み合せて接合する必要がある。

【0008】 この際、従来ではセラミックス基繊維複合部材のパーツ同士を活性金属で接合する活性金属法が採用されたが、この方法では複雑形状物故、接合荷重を充分にとれないこともあった。

【0009】 さらに、この活性金属法では、セラミックス基繊維複合部材と活性金属との膨張係数の差によって応力が発生し、接合部強度が低下する問題があり、また、接合面積が大きい場合には接合部や複合材料にクラックがはいる問題があった。

【0010】 本発明はこのような事情に鑑みてなされたもので、複雑形状部品となるセラミックス基繊維複合部材を構成するためにセラミックス繊維からなる複数の予備成形体パーツを用いて製造されるものに対し、各予備成形体パーツの接合部の機械的強度特性の改善を図ったセラミックス基繊維複合部材およびその製造方法を提供することを目的とする。

## 【0011】

【課題を解決するための手段および作用】 これまで、複合材料の製造方法のうち、セラミックスの反応を利用する反応焼結法（または反応含浸法：reactive infiltrat

ion) が知られている。

【0012】この方法では、例えばカーボン(C) + シリコン(Si) → 炭化けい素(SiC)の反応により、C繊維の予備成形体に熔融Siを含浸させる等が可能であり、Si-C系、Si-Mo系等の金属間化合物の生成等について種々研究が進められている。

【0013】発明者においては、このような反応焼結の技術を、複雑形状部品となるセラミックス基繊維複合部材を構成するためにセラミックス繊維からなる複数の予備成形体パーツを組立てる際の接合に利用することを想到したものである。

【0014】即ち、本発明に係るセラミックス基繊維複合部材は、セラミックスマトリックス中にセラミックス繊維およびセラミックスウイस्カーの少なくともいずれかを複合化したセラミックス基繊維複合部材であって、前記セラミックス基繊維複合部材が複数の部材を接合したものであり、各部材の接合部分を反応焼結で形成されるセラミックスからなる界面層で形成したことを特徴とする。

【0015】また、本発明に係るセラミックス基繊維複合部材の製造方法は、セラミックス繊維およびセラミックスウイस्カーの少なくともいずれかからなる複数の予備成形体パーツに反応焼結用材料を含有させ、得られた成形体パーツの接合面に反応焼結用材料を塗布した状態で組立てた後、この組立てられた成形体にセラミックスマトリックスを構成するための熔融材料を含浸させながら反応焼結させるとともに、前記成形体パーツの接合面に塗布した反応焼結用材料の反応焼結を行わせることにより接合を行うことを特徴する。

【0016】本発明の方法で望ましくは、セラミックス繊維およびセラミックスウイस्カーとしてSiCを主成分とするものを適用するとともに、成形体パーツの接合面に塗布する反応焼結用材料として、Si粉末、SiC粉末、およびC粉末の少なくとも1種以上の組合せのスリップを適用し、組立てた成形体に熔融Siを含浸させる。

【0017】この望ましい方法によって製造されるセラミックス基繊維複合部材においては、セラミックスマトリックスおよびセラミックス繊維およびセラミックスウイस्カーが主としてSiCによって構成され、さらに成形体パーツ間の接合部分に主としてSiCまたはSiC + Siの組成を有する界面層が形成される。

【0018】このような反応焼結により形成されたセラミックスは、その生成時に収縮を伴わず、かつ反応温度は低い。それ故、接合をこの界面層により行うと、応力の発生を低減させることが可能なおえ、一旦形成されたセラミックスは、耐熱性に優れ、高温までこの効果は維持できる。

【0019】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面を参照して説明

する。

#### 【0020】実施例1

図1は本実施例によるセラミックス基繊維複合部材の製造工程を示す図、図2(A)、(B)は製造途中の状態を示す図、図3は同実施例および下記の他の実施例の方法によって製造されたセラミックス基繊維複合部材の特性等を示す表である。

【0021】本実施例では図1に示すように、例えば1対の予備成形体パーツ1、2を成形し(ステップS101、S102)、これらに反応焼結用材料を含浸(ステップS103、S104)させた後、これらの予備成形体パーツ1、2の組立て時に接合面となる部分に反応焼結用材料を塗布する(ステップS105、S106)。

【0022】ここで予備成形体パーツ1、2はSiCの繊維束を2次元または3次元的に織成したものを10層積層し、図2(A)に示すように、クロス状にする。また、予備成形体パーツ1、2に含浸させる反応焼結用材料3は、本実施例ではSiC粉末とC粉末である。これらの粉末を溶剤としての水に混合分散させてスリップとし、ステップS103、S104の含浸工程で予備成形体1、2に含浸する。そして、各予備成形体パーツ1、2に含浸させたスリップの水分を乾燥により除去し、各パーツ1、2にSiC粉末およびC粉末を残存させる。そして、予備成形体パーツ1、2同士の接合面1aおよび(または)2aに塗布する反応焼結用材料としてSi粉末とC粉末を用い、上記と同様にスリップとしてステップS105、S106の塗布工程で塗布する。ステップS105、S106はどちらか一方でも充分である。

【0023】次に、得られた予備成形体パーツ1、2の接合面1a、2aを互いに接合して1つの予備成形体4として組立て、水分を乾燥により除去し、接合面にSiC粉末及びC粉末を残存させる。(ステップ107)。

【0024】この後、予備成形体4を熱処理部5に導入し(ステップS108)、熔融マトリックスの含浸反応焼結を行う(ステップ109)。

【0025】即ち、熱処理部5は図2(B)に示すように、真空加熱炉であり、例えば $10^{-4}$ Pa以上の真空中で1500℃の熱処理を行い粉末Siを溶融させる。この溶融Si6は毛細管7によって予備成形体4に吸上げられ充填される。この場合、各予備成形体パーツ1、2の内部および接合面1a、2aには、反応焼結用材料としてのC粉末が存在しているので、溶融Si6の含浸によって(Si + C → SiC)の反応が行われ、SiCマトリックス8が生成されるとともに、各予備成形体パーツ1、2の接合面にはSiCの界面層9が形成される。

【0026】この後、冷却およびその最終部品形状の仕上加工を行い(ステップS110)、これによりSiC基繊維複合部材としての製品が得られる。

【0027】本実施例によると、反応生成物であるSi

Cが予備成形体パーツ1、2の接合面で確実に形成され、予備成形体パーツ1、2同士が極めて強固に接合される。

【0028】そして、この場合、反応焼結により形成されたSiCは、その生成時に収縮を伴わず、かつ、反応温度は低い。それ故、接合界面にこの界面層が形成されると、応力の発生を低減させることが可能となえ、一旦形成されたSiCは、耐熱性に優れ、高温までこの効果は維持できる。

【0029】本実施例の方法で製造されたSiC基繊維複合部材について、各予備成形体パーツ1、2間の接合強度試験を行なった結果、図3に示すように150MPaの接合強度を有することが確認された。

#### 【0030】実施例2

本実施例でも、図1および図2(A)、(B)に示した前記実施例1と同様の方法を用いてSiC基繊維複合部材を製造したが、図3に示すように、予備成形体パーツ1、2の接合面1a、2aの塗布材料をSiC粉末のスリップのみとした。

【0031】本実施例において製造されるSiC基繊維複合部材では、接合面1a、2aでのCによる反応焼結が少ないため予備成形体パーツ1、2間に含浸したSiの残存量が実施例1に比して多くなり、界面層は主としてSiC+Siの組成を有するものとなる。

【0032】本実施例によって得られるSi基繊維複合部材でも、前記実施例1のものと略同様の効果が奏される。予備成形体パーツ1、2間の接合強度は、試験結果によると100MPaであった。

#### 【0033】実施例3

本実施例でも、前記各実施例と同様の方法を用いてSiC基繊維複合部材を製造したが、図3に示すように、予備成形耐パーツ1、2の接合面1a、2aの塗布材料をC粉末のスリップのみとし、Si粉末を用いない点が前記各実施例と異なる。

【0034】本実施例において製造されるSiC基繊維複合部材では、予備成形体パーツ1、2間の界面層は、Cの密度が大きい場合はSiC、Cの密度が低いときは主としてSiC+Siの組成を有するものとなる。

【0035】本実施例によって得られるSi基繊維複合部材でも、前記実施例1のものと略同様の効果が奏される。予備成形体パーツ1、2間の接合強度は、試験結果によると100MPaであった。

#### 【0036】実施例4

本実施例でも、前記各実施例と同様の方法を用いてSiC基繊維複合部材を製造したが、図3に示すように、予備成形耐パーツ1、2の接合面1a、2aの塗布材料をSiC粉末+C粉末のスリップとした。

【0037】本実施例によって得られるSi基繊維複合部材でも、前記実施例1のものと略同様の効果が奏される。予備成形体パーツ1、2間の接合強度は、試験結果

によると150MPaであった。

【0038】この実施例ではスラリーにおけるSi粉末の分散がよく、またスラリーの粘度も調整しやすく製造が容易である。

#### 【0039】他の実施例

なお、以上の実施例1~3のほか、接合面の塗布材料としてSiC粉末とC粉末との相対量を種々に変化して実施し、界面層に残存するSi量を調べた。

【0040】図4はSiCとCとの相対比を横軸にとり、密度を縦軸にとって示したグラフである。これらの図から分るように、例えばSiC100%の場合、密度比(1.9/3.2)×100から40~50%のSiが導入されることになる。そこで、この場合にはSiCの間をCで埋める形で補足することにより、残Si量を殆ど零とすることができる。したがって、前記実施例2、3の場合でも、接合面の界面層をSiCのみとすることが可能である。

【0041】このように、前記実施例2、3、4においても界面層の組成のほとんど全てをSiCとなるように調整することで、接合強度を実施例1と同様に高めることができる。

#### 【0042】比較例

マトリックスおよび繊維にSiCを適用して製造したSiC基礎繊維複合部材を、接合面に活性金属、例えばチタン(Ti)を含む接合材を介在させて熱処理することにより接合した。

【0043】ところが、この接合材料については、接合面積が100cm<sup>2</sup>以上になるとセラミックスにクラックが入り、接合が不可能であった。

#### 【0044】開示例

なお、界面層の組成については、Siとすることも可能である。この場合には、Siがセラミックス基複合材料の接合部において使用温度領域で組成変形する界面層とすることができ、使用温度領域にて負荷された応力集中が、この接合部の塑性変形によって緩和でき、より高負荷に耐えることが可能になる。

【0045】また、予備成形体パーツとして、SiCウイスキーや短繊維等をスラリーとしたものを乾燥することによって板状に成形したものでも、上記と同様の効果を得ることができる。

#### 【0046】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、複雑形状部品となるセラミックス基繊維複合部材を構成するためにセラミックス繊維からなる複数の予備成形体パーツを組立てて製造されるものに対し、各予備成形体パーツの接合部間の機械的強度特性の改善が図れるようになるという効果が奏される。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るセラミックス基繊維複合部材の製造方法の実施例を示す工程図。

【図2】(A)は図1で示したステップS104、S105を説明するための模式図、(B)は図1で示したステップS109を説明するための模式図。

【図3】本発明に係るセラミックス基繊維複合部材の実施例による組成および接合強度特性を比較例とともに示す表。

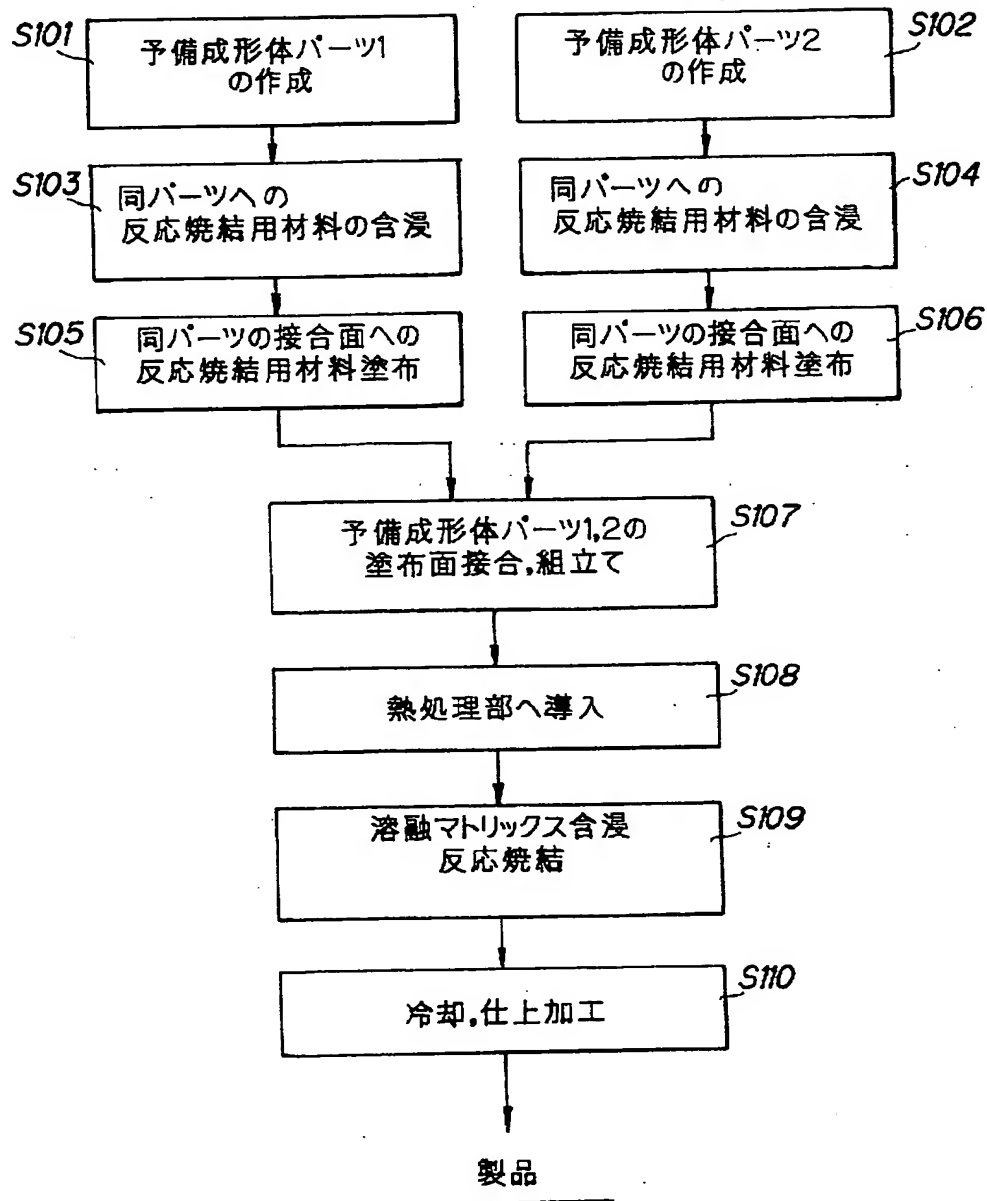
【図4】本発明の他の実施例を説明するためのグラフ。

【符号の説明】

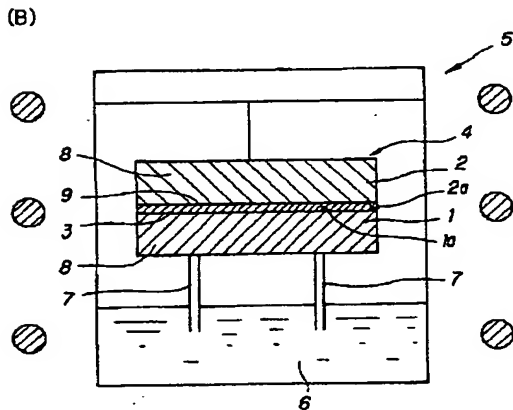
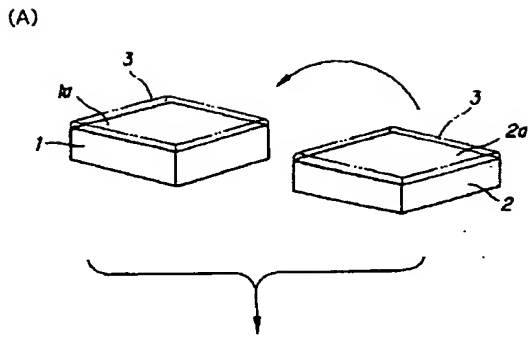
1, 2 予備成形体パーツ

1 a, 2 a 接合面  
3 反応焼結用材料  
4 予備成形体  
5 熱処理部  
6 熔融Si  
7 毛細管  
8 SiCマトリックス  
9 界面層

【図1】



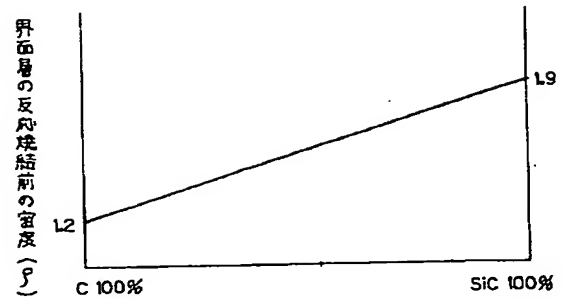
【図2】



【図3】

	接合面の 塗布材料	含浸する 溶湯	接合部の 界面組成	接合強度 (HPa)
実施例 1	Si+C	Si	SiC	150
実施例 2	SiC	Si	SiC+Si	100
実施例 3	C	Si	SiC+Si	100
実施例 4	SiC+C	Si	SiC+Si	150
比較例	活性金属		金属層	100cm <sup>2</sup> 以上の接合

【図4】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>

識別記号 庁内整理番号

F I  
C 0 4 B 35/80

技術表示箇所

C